

Studies on incorporation of ^{90}Sr and ^{137}Cs in hard tissues of cattle and monkey in the Fukushima environment

| | |
|--------|---|
| 著者 | 小荒井 一真 |
| 号 | 84 |
| 学位授与機関 | Tohoku University |
| 学位授与番号 | 理博第3209号 |
| URL | http://hdl.handle.net/10097/00125457 |

論 文 内 容 要 旨

| | | | |
|--------------|--|-----|----------|
| 氏 名 | 小荒井 一真 | 提出年 | 平成 3 0 年 |
| 学位論文の 題 目 | Studies on incorporation of ^{90}Sr and ^{137}Cs in hard tissues of cattle and monkey in the Fukushima environment (福島原発周辺のウシおよびサル硬組織への ^{90}Sr と ^{137}Cs の取り込みの研究) | | |

論 文 目 次

1. Introduction
 - 1.1. Pollution of ^{90}Sr and ^{137}Cs by the past nuclear weapon tests and radioactive pollution accidents
 - 1.2. Pollution of ^{90}Sr and ^{137}Cs by the Fukushima-Daiichi Power Plant accident
 - 1.3. Purpose of this study
2. Materials and methods
 - 2.1. Materials
 - 2.2. Determination of ^{90}Sr , ^{137}Cs , and ^{134}Cs
 - 2.2.1. Determination of ^{90}Sr
 - 2.2.2. γ -ray spectrometry of ^{137}Cs and ^{134}Cs
 - 2.3. Elemental analysis of alkali metals and alkaline earth metals
 - 2.4. Dose estimation method of bone marrow
3. Incorporation of ^{90}Sr and ^{137}Cs in the hard tissue
 - 3.1. Incorporation of ^{90}Sr in the tooth
 - 3.1.1. Cattle
 - 3.1.2. Monkey
 - 3.2. Incorporation of ^{90}Sr in the bone
 - 3.2.1. Cattle
 - 3.2.2. Monkey
 - 3.3. Incorporation of ^{137}Cs in the tooth
 - 3.3.1. Cattle
 - 3.3.2. Monkey
 - 3.4. Incorporation of ^{137}Cs in the bone
 - 3.4.1. Cattle
 - 3.4.2. Relationship of ^{137}Cs in the tooth with the body samples of cattle
 - 3.4.3. Monkey
 - 3.5. Dose estimation in the bone marrow of cattle after the Fukushima-Daiichi Nuclear Power Plant accident

3.6. Summary

4. Transfer of ^{90}Sr , ^{137}Cs , alkaline earth metals, and alkali metals from polluted soil to the tooth of cattle

4.1. Transfer of ^{90}Sr and alkaline earth metals

4.1.1. Comparison of specific activity

4.1.2. Ratios of stable Sr, Ba, and ^{90}Sr to Ca in the environmental samples

4.2. Transfer of ^{137}Cs and alkaline earth metals

4.2.1. Comparison of specific activity

4.2.2. Ratios of stable Cs, Rb, and ^{137}Cs to K in the environment

4.3. Summary

5. Conclusion

【1 章】 ^{90}Sr と ^{137}Cs は共に半減期が約 30 年の核分裂生成物であり、生体への長期の被ばく影響が懸念されるため、古くから注目されてきた核種である。福島第一原子力発電所 (FNPP) 事故においてもこれら 2 核種は環境中に放出されており、今回の事故後の生物への取り込み状況を知ることがきわめて重要である。東北大学は「被災動物の包括的線量評価事業」を立ち上げ、福島県内の旧警戒区域内でウシやサルをはじめとした被災動物を採取・分析して、事故後の生物への被ばく影響調査を開始した。本研究では、この事業における放射性核種の生体内分布調査の一貫として、被災したウシやサルの硬組織に含まれる ^{90}Sr 、 ^{137}Cs を定量した。アルカリ土類金属元素である ^{90}Sr の歯への取り込みは、歯の構成成分の Ca と同様に歯の形成に伴って主に起こるはずである。したがって、1 頭のウシの歯を対象として分析するだけでも、形成時期の異なる歯の ^{90}Sr 量を比較すれば、その取り込みのタイムプロファイルが一連の歯に記録されるのではないかと考えた。すなわち、放射性核種による環境汚染の時間変化を記録する新たな指標ともなりうる。あわせて歯中の ^{137}Cs も測定し、その分布を比較した。また、骨は歯と異なり、形成後も代謝に伴い組織が入れ替わる。骨格を形成する皮質骨は形成後の代謝がわずかであるが、骨内部に存在する海綿骨は形成後も代謝が活発である。代謝活動の違いに注目すると、骨の部位ごとに異なる ^{90}Sr の取り込みが観測されることが期待される。さらに、汚染された環境中から歯に至るまでの 2 核種の移行を知るために、土壌や植物中の ^{90}Sr と ^{137}Cs を測定し、硬組織と比較した。比較の際に、比放射能 (^{90}Sr /安定 Sr および ^{137}Cs /安定 Cs) や微量元素/必須元素比 (Sr/Ca および Cs/K) を用いて、 ^{90}Sr と ^{137}Cs の元素としての移行の特徴を明らかにすることを目指した。

【2 章】ウシは福島県内旧警戒区域内で 2011 年から 2014 年にかけて合計 26 頭を採取した。ウシの下顎骨から 9 本の歯を採取した。下顎骨または脛骨から皮質骨と海綿骨をそれぞれ分離し、粉碎、乾燥した。ウシの採取地点では土壌、植物も採取した。水と 1M 酢酸アンモニウム水溶液を用いて、土壌中の可溶成分を抽出した。ニホンザルは福島県内旧警戒区域内において、2012 年から 2014 年にかけて合計 4 頭を採取し、全身骨と歯を試料した。試料中の ^{90}Sr は発煙硝酸法または Sr resin による固相抽出法により単離し、2 π ガスフロー検出器によって定量した。 ^{137}Cs と ^{134}Cs は粉碎・乾燥した試料を 100 cc プラスチック容器に均一に詰め、Ge 半導体検出器-4kPHA による γ 線スペクトロメトリーにより定量した。アルカリ土類金属、アルカリ金属の測定は ICP-AES、または ICP-MS によって行った。

【3 章】本研究において採取したウシとサルの硬組織中には ^{90}Sr および ^{137}Cs が検出され、原発事故による汚染が確認された。それらの比放射能 (Bq (g Sr)^{-1} または Bq (mg Cs)^{-1}) は、採取地点のそれぞ

れの核種の沈着量の大小関係とよく対応しており、それぞれの動物の生息域における汚染状況を示していた。若ウシ（採取時 2 歳以下）の 9 本の歯を比較すると、 ^{90}Sr 比放射能は事故後に形成された歯では明らかに高く、形成後の歯と区別することができた。すなわち、環境汚染の情報の時間変化が歯の形成に伴って記録されていることが初めて示された。一方、 ^{137}Cs の比放射能は事故前に形成された歯でも高く、その取り込み機構が ^{90}Sr とは異なることが示唆された。福島第一原発事故後のウシの皮質骨と海綿骨への ^{90}Sr の取り込みを比較すると、いずれも形成期の取り込みが共通して見られたほか、より代謝が活発な海綿骨では形成後の継続的な取り込みが起こっていることがわかった。このように、 ^{90}Sr の硬組織への取り込みは、形成や代謝と密接に関係していることが明らかになった。一方で、 ^{137}Cs は骨において形成時や代謝だけでなく形成後にも取り込まれていることがわかり、歯の結果と合わせ、 Cs が硬組織の形成後にも取り込まれていることが初めてわかった。サル全身骨では、個体内で全身での ^{90}Sr と ^{137}Cs の分布がほぼ一様であることがわかった。また、ウシとサルを比較すると、 ^{90}Sr と ^{137}Cs の硬組織への取り込みには、には、形成時の影響が見られるなど、共通性が見出された。

【4 章】環境中の ^{90}Sr と ^{137}Cs がどのようにしてウシの硬組織に移行したかを議論するために、ウシ歯と土壌の可溶成分、土壌について ^{90}Sr と ^{137}Cs のそれぞれの比放射能を比較した。土壌では、 ^{90}Sr 、 ^{137}Cs 共に土壌の可溶成分の比放射能が土壌自体の値より大きくなった。この結果は、放射性核種と安定元素の存在状態の違いに起因する。 ^{90}Sr と ^{137}Cs は事故により沈着したため、土壌粒子の表面に付着していたことが想定される。一方で、安定 Sr と安定 Cs はもともと土壌粒子の表面と内部の両方に存在していたはずである。そのため、可溶成分は土壌粒子表面から溶けだした成分であったとすれば、可溶成分の比放射能が土壌自体の値よりも高くなっていたことが説明できる。土壌から可溶成分への ^{90}Sr と ^{137}Cs の抽出率 (^{90}Sr : 64 %、 ^{137}Cs : 8.8 %) は、安定 Sr と安定 Cs より高く (安定 Sr : 3.8 %、安定 Cs : 1.7 %)、この仮説と矛盾のない結果となった。

事故後に形成された歯と可溶成分の ^{90}Sr の比放射能を比較すると、ウシの歯は可溶成分と同等かそれ以上であった。これらの歯の形成期間で、ウシは汚染された植物や水を摂取していたと考えられる。したがって、歯に取り込まれた ^{90}Sr の移行経路は可溶成分から植物や水を経由したことが示唆される。 ^{137}Cs 比放射能を比較すると、ウシの歯の形成時期によらず、歯は土壌と同等かそれよりわずかに高く、可溶成分の高い比放射能が反映された可能性があるが、 ^{90}Sr の場合ほど明確な関係でなかった。 ^{137}Cs に関しては、ウシの取り込んだ汚染された植物や水の比放射能が低かった可能性が考えられる。比放射能を用いることで、 ^{90}Sr と ^{137}Cs の標識する元素としての移行経路での動態を議論できた。

また、土壌、植物、歯中の Sr/Ca 、 Cs/K 比の変化を比較したところ、 Sr/Ca 比はこの順番で次第に値が小さくなっていることがわかり、摂取・固定化等のプロセスでアルカリ土類元素が弁別されていることがわかった。それに伴い、ウシ歯の $^{90}\text{Sr}/\text{Ca}$ 比は、土壌の可溶成分の $^{90}\text{Sr}/\text{Ca}$ 比に比べ一桁低い値となった。一方、 Cs/K 比は土壌、植物、歯中でほぼ一定であり、 ^{137}Cs も K とほぼ同様にその区別なく移行していることがわかった。すなわち、汚染された土壌から植物を介する動物への移行においては、必須元素に比べて ^{90}Sr はその量を減らし、 ^{137}Cs は必須元素に対する影響を受けずに移行していることが示唆された。

【5 章】3 章ではウシとサルの硬組織への ^{90}Sr および ^{137}Cs の取り込みに注目し、 ^{90}Sr は硬組織の形成や活発な代謝に伴い取り込まれ、 ^{137}Cs は硬組織の形成や代謝だけでなく形成後にも取り込まれていたことが示された。4 章では環境中からウシの歯への移行について議論した。土壌から可溶成分への溶出は核種や元素の存在状態に依存することが示唆された。また、歯は形成時期の可溶成分の ^{90}Sr の汚染

や摂取した植物や水の汚染を反映していたことが示唆された。歯中の ^{137}Cs は、ウシの摂取していた植物や水の汚染を反映していると推測できた。このように、歯をはじめとした硬組織は環境中の ^{90}Sr や ^{137}Cs 汚染の指標となり得ると考えられる。また、サルの全身骨の測定から歯は全身骨の ^{90}Sr と ^{137}Cs の取り込みの指標になり得ることが示された。つまり、造血に関わる組織である骨髄の被ばく線量の推定における重要な指標となる。本論文で得られた硬組織への ^{90}Sr と ^{137}Cs の取り込みや環境からの移行に関する知見は、乳歯を用いた測定への応用が最も効果的であると考えられる。特にヒトにおいて、乳歯は容易に試料採取が可能な貴重な硬組織である。将来的に歯と骨の ^{90}Sr と ^{137}Cs の取り込みモデルを構築することで、歯中の ^{90}Sr と ^{137}Cs を測定のみでヒトの摂取した食物中の ^{90}Sr と ^{137}Cs による汚染や骨髄線量の推定が可能になると考えられる。

論文審査の結果の要旨

小荒井一真氏が提出した博士論文は全五章から構成されている。東日本大震災によって引き起こされた福島第一原子力発電所事故による環境放射能汚染を受け、ヒトへの放射線影響を算定する上で重要な基礎知見となる“動物（ウシ、サル）への長寿命放射性核種 ^{90}Sr 、 ^{137}Cs の硬組織中への取り込み”に着目した研究をまとめている。硬組織中の放射性核種量と環境汚染の地域差や取り込み時期の関係、比放射能を利用した取り込み経路の言及、ヒトに近いサルの骨髓被ばく線量の算出などがまとめられている。

第一章では、過去に起こった放射能汚染とその後の放射能調査・研究の概括をもとにして福島原発事故による環境汚染の特徴を明らかにするとともに、長期間の影響が危惧される長寿命放射性核種 ^{90}Sr 、 ^{137}Cs の重要性を指摘している。また、福島原発事故に設置した東北大学震災復興プロジェクトにおける本研究活動の位置づけを明確にし、研究例の少ない硬組織（歯や骨）中への両核種の取り込み時期や環境中の微量元素の移行に関わる研究の意義を記している。

第二章には、調査に関わる地域、時期、動物や環境試料、試料の処理法、分析方法等の実験項がまとめられている。

第三章では、ウシおよびサルの硬組織中の ^{90}Sr 、 ^{137}Cs の分析結果とその特徴がまとめられている。硬組織中の ^{90}Sr 、 ^{137}Cs 量は生息地域の汚染レベルと相関しており、その汚染の程度にしたがって環境から動物に移行していることが示された。特に、成長途中で汚染の影響を受けたウシの歯では、事故後に形成された歯において ^{90}Sr の取り込み量が多いことを見いだし、歯の形成過程での取り込みの重要性を明らかにした。また、骨への ^{90}Sr の取り込みにおいてもその形成過程が重要な役割を果たしていたほか、比較的代謝の活発な骨では形成後においても継続的な取り込みが起きていることを見いだした。その一方で ^{137}Cs は、硬組織の形成前後や代謝の有無等の影響を受けずに分布していることがわかり、汚染環境における継続的な取り込みが起きていることが示唆された。サルの骨髓被ばく線量の算出結果では、 ^{90}Sr だけでなく ^{137}Cs の寄与も無視できないことが示され、福島原発事故による環境放射能汚染の特徴が現れた。

第四章では、 ^{90}Sr 、 ^{137}Cs に加え、微量の Sr、Cs や Ca、K 等の定量結果に基づき、土壌や植物などの環境試料とウシの硬組織を比較し、取り込みに至る移行に関わる考察をまとめている。ここでは、土壌粒子に吸着した放射性核種の水への溶けやすさがその移行に重要な役割を果たすことが示唆された。放射性核種 ^{90}Sr 、 ^{137}Cs の土壌からの溶出割合は安定元素 Sr、Cs よりも高くなり、主に土壌粒子表面に吸着・偏在する放射性核種の溶出特性が見られた。特に ^{90}Sr と Sr の溶出割合の差が大きいため可溶性成分中の ^{90}Sr 比放射能が高くなり、これが形成途中のウシの歯に反映されていることが示唆された。また微量元素の比較では、たとえば Sr/Ca 比は土壌、植物、ウシの歯の順に減少していくことがわかり、必須元素に比べて ^{90}Sr は移行に伴ってその量を減らすことがわかった。その一方で Cs/K 比は試料間において大きな違いはなく、均一に移行することが示唆された。

第五章では、動物の硬組織中への ^{90}Sr 、 ^{137}Cs の結果と特性について総括している。

本研究で得られた成果は、福島原発事故を受け、長期間にわたり継続的に検討する必要がある長寿命人工核種 ^{90}Sr 、 ^{137}Cs の環境動態研究及び被ばく影響研究において重要な新知見を提示し、当該分野の進展に貢献するものである。

以上の研究業績は、論文提出者が自立して研究活動を行うのに必要な高度の研究能力と学識を有することを示している。したがって小荒井一真氏提出の博士論文は、博士（理学）の学位論文として合格と認める。